

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-106521

(43)Date of publication of application : 17.04.2001

(51)Int.Cl.

C01B 33/18
C03B 20/00

(21)Application number : 11-286808

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP
ADMATECHS CO LTD

(22)Date of filing : 07.10.1999

(72)Inventor : SAKAI TAKENOBU
ABE SAN
KATO YUKIHIRO

(54) PRODUCING METHOD OF AMORPHOUS SILICA PARTICLE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a producing method of amorphous silica particles which have low production cost and high sphericity.

SOLUTION: This producing method of amorphous silica particles is featured by comprising a stage of supplying raw material which supplies silicon powder and silica powder together with a carrier gas into a reaction chamber, a burning and heating stage of burning the supplied silicon powder in the reaction chamber, generating heat, heating the resultant silica and the silica powder and dissolving or vaporizing the same and a cooling stage of cooling the dissolved and vaporized silica and forming the amorphous silica particles. Therein, the silica is made to a complete sphere owing to the surface tension by melting and is made to the amorphous silica particles having high sphericity by being cooled as it is. Further, by being vaporized once, the silica is made to the amorphous silica having high sphericity when cooled and flocculated.

*** NOTICES ***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]A manufacturing method of amorphous silica particles characterized by comprising the following.
A feeding process of supplying silicon powder and silica powder in a reaction chamber with carrier gas.
A combustion heating process which burns said supplied silicon powder in said reaction chamber, heats silica which generates and generates heat, and said silica powder, and is made to dissolve thru/or evaporate.
A cooling process which cools said silica made to dissolve thru/or evaporate, and forms amorphous silica particles.

[Claim 2]A manufacturing method of the amorphous silica particle according to claim 1 whose mean volume diameter of said amorphous silica particle in which a weight ratio to weight by which said silica powder set this silica powder and said silicon powder of this silica powder, and a mean volume diameter were formed is the combination of a value used as 20 micrometers or less.

[Claim 3]The silica particle manufacturing method according to claim 1 which is the combination of a value in which said silica to generate and this silica powder evaporate said silica powder in said combustion heating process in a weight ratio to weight which set this silica powder and said silicon powder of this silica powder, and a mean volume diameter.

[Claim 4]A manufacturing method of the amorphous silica particle according to claim 3 a weight ratio to weight by which said silica powder set this silica powder and said silicon powder of this silica powder, and whose mean volume diameter of said amorphous silica particle in which a mean volume diameter was formed are the combination of a value used as 2 micrometers or less.

[Claim 5]A manufacturing method of the silica particle according to claim 4 which a mean volume diameter of said silica powder is 10 micrometers or less, and is less than 50 % of the weight to weight by which this silica powder set this silica powder and said silicon powder.

[Claim 6]In said combustion heating process a weight ratio to weight which said silica powder is 1/2 of a mean volume diameter of amorphous silica particles which a mean volume diameter manufactures, and set this silica powder and said silicon powder of this silica powder, The silica particle manufacturing method according to claim 2 which is a value which said silica to generate and this silica powder do not evaporate.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the manufacturing method of amorphous silica particles with high sphericity.

[0002]

[Description of the Prior Art]As a manufacturing method of a general metallic-oxide ultrafine particle, conventionally to JP,1-55201,B. There is an indication of the manufacturing method which compounds the metallic-oxide [which forms chemicals flame with a burner in the atmosphere containing oxygen, and can form a dust cloud for the metal powder which constitutes the target metallic oxide into this chemicals flame] ultrafine particle whose particle diameter carry out a quantity injection, it is made to burn, and is about 5-100 nm.

[0003]The metal powder which constitutes a metallic oxide in the patent No. 2600181 gazette, After supplying the metal oxide powder in a reaction vessel with carrier gas, metal powder is burned, and the manufacturing method of the metallic oxide which carries out grain growth of the metal oxide powder, and compounds it is indicated by using metal oxide powder of the raw material as a core.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]In the manufacturing method indicated to above-mentioned JP,1-55201,B, since the metal silicon of the raw material was expensive, the particle diameter of the amorphous silica particles by which operation is difficult and is manufactured by a cost aspect was not able to be controlled broadly, either.

[0005]And although it is [that the manufacturing method of an alumina particle is only indicated concretely, and] and the alumina powder of large particle diameter can be obtained from the alumina powder of a raw material in the indicated manufacturing method in the patent No. 2600181 gazette, About manufacture of the alumina powder whose particle diameter is smaller than a raw material, it was unstated. And about the sphericity of the manufactured alumina, it was remarkable and was not high. Therefore, it was not clear that the amorphous silica particles which have the feature in character can be manufactured in the manufacturing method indicated in this gazette.

[0006]The amorphous silica particles with high sphericity have various useful uses, such as a use as a bulking agent of wrap encapsulant, in the package of a semiconductor. In that case, amorphous silica particles are character with preferred sphericity being high. The method of manufacturing amorphous silica particles with high sphericity easily did not exist in the former. As for amorphous silica particles, it is desirable to require the thing of various particle diameter by a use, and to obtain the thing of various particle diameter with a simple manufacturing method.

[0007]That is, let it to provide the manufacturing method of amorphous silica particles with a low manufacturing cost and high sphericity be the issue which should be solved in this invention.

[0008]

[Means for Solving the Problem]As a result of inquiring wholeheartedly, this invention persons invented a manufacturing method of the following amorphous silica particles, in order to solve an aforementioned problem.

[0009]That is, a manufacturing method of amorphous silica particles of this invention comprises the following:
A feeding process of supplying silicon powder and silica powder in a reaction chamber with carrier gas.
A combustion heating process which burns said supplied silicon powder in said reaction chamber, heats silica which generates and generates heat, and said silica powder, and is made to dissolve thru/or evaporate.
A cooling process which cools said silica made to dissolve thru/or evaporate, and forms amorphous silica particles.

[0010]That is, by carrying out heat melting of the silica, it becomes a real ball with the surface tension, and amorphous silica particles with high sphericity are formed by being cooled as it is. And once, by making it

evaporate, when cooling and condensing silica, it serves as amorphous silica particles with high sphericity. [0011] Since heat which generates silica when metal silicon of a raw material oxidizes, melting thru/or in order to make it evaporate, is used, silica can be heated for a long time, and it is also possible to enlarge particle diameter of amorphous silica particles manufactured. And by adjusting quantity of silicon, calorific value can be increased, silica can be evaporated and it can also be considered as particles.

[0012] Therefore, particle diameter of amorphous silica particles manufactured eventually can be changed by controlling a ratio of particle diameter of silica, silicon, and silica which are supplied first.

[0013] Therefore, according to the manufacturing method of amorphous silica particles of this invention, without carrying out extensive use of the expensive silicon superfluously, it has required particle size distribution and amorphous silica particles with high sphericity can be manufactured.

[0014]

[Embodiment of the Invention] The embodiment of the manufacturing method of the amorphous silica particles of this invention is described in detail below. This invention is not limited by the embodiment shown below.

[0015] The manufacturing method of the amorphous silica particles of this embodiment is provided with the following.

Feeding process.

Combustion heating process.

Cooling process.

[0016] The manufacturing method of the amorphous silica particles of this embodiment is performed using the manufacturing installation which has a feeding part, a reaction chamber, and an amorphous silica particle capturing part, for example. It is a means for a feeding part to store a raw material and to supply a raw material in a reaction chamber, a reaction chamber is a means to burn a raw material inside, and an amorphous silica particle capturing part is a means to catch the manufactured amorphous silica particles.

[0017] A feeding process is a process of supplying silicon powder and silica powder in a reaction chamber with carrier gas.

[0018] It mixes beforehand, silicon powder and silica powder may be stored in the same place, and before storing independently and supplying the reaction chamber, or after being supplied, they may be mixed. When storing in the same place, the number of carrier gas may be one, but when stored independently, two kinds of carrier gas may be used.

[0019] The silicon powder of purity according to the purity for which the amorphous silica particles manufactured are asked is used for silicon powder. Specifically according to purity required for amorphous silica particles, the allowable content of elements other than silicon elements and oxygen elements is specified. In manufacturing the amorphous silica particles of a high grade, it prescribes the purity of silicon powder that required purity is securable.

[0020] And although the particle diameter in particular of silicon powder is not limited, it is preferred that it is the particle diameter of the grade which is easy to mix with a silica particle. The to some extent finer one of particle diameter is good the making it easy to burn purpose. However, if particle diameter is made small too much, mobility will worsen, and there is inconvenience of becoming difficult to supply in a reaction chamber. Specifically, it is more preferred that it is about 5–30 micrometers. The form in particular of the particles of silicon powder does not need to be spherical, and is not limited.

[0021] Silica powder does not ask the crystalline form of a crystalline substance, an amorphous substance, etc. It is also possible to use again the amorphous silica particles manufactured with the manufacturing method of the amorphous silica particles of this invention as a raw material. And the silica powder of purity according to the purity for which the amorphous silica particles manufactured are asked also about silica powder is used. According to the purity for which the amorphous silica particles manufactured are specifically asked like silicon powder, the permissible dose of elements other than the silicon elements and oxygen elements which are contained in silica powder is determined.

[0022] The form of the particles of silica powder does not need to be spherical especially as well as silicon powder, and is not limited. And the particle diameter of silica powder is not independently determined only with the particle diameter of silica powder, and is influenced by the mixture ratio of the silicon powder and silica powder which are mixed.

[0023] That is, the particle diameter of silica powder requires that the silica generated with silica powder at the below-mentioned combustion heating process according to the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of the silica powder should be melting thru/or the particle diameter to evaporate. If the particle diameter of silica powder is determined conversely, the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of the silica powder requires that silica powder and the silica to generate should be melting thru/or a weight ratio to evaporate at the below-mentioned combustion heating process. It is because amorphous silica particles with high sphericity cannot be eventually manufactured unless silica does not fuse, thru/or evaporates.

[0024]And it is preferred to determine the combination of a value so that the mean volume diameter of the amorphous silica particles in which the combination of the value of the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of silica powder, and a mean volume diameter is formed eventually may be set to 20 micrometers or less. A mean volume diameter is because an amorphous silica particle of 20 micrometers or less has higher usefulness.

[0025]It is preferred that it is the combination of the value which the silica and silica powder which the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of silica powder, and a mean volume diameter generate at the below-mentioned combustion heating process evaporate. It is because amorphous silica particles with small particle diameter can be manufactured as compared with the silica powder supplied by making silica evaporate even if it does not use expensive silicon in large quantities. It is more preferred that the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of silica powder for the same reason, and a mean volume diameter are the combination of the value from which the mean volume diameter of the amorphous silica particles formed eventually is set to 2 micrometers or less.

[0026]And as for the mean volume diameter of silica powder, 20 micrometers or less are preferred, and it is more preferred that it is 10 more micrometers or less. In this case, less than 50% of the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of silica powder is desirable, and is more desirable. [less than 30 more% of]

[0027]And the combination with the weight ratio to the weight which set the particle diameter of still more desirable silica powder, and the silica powder and silicon powder of silica powder, When the mean volume diameter of the amorphous silica particles to manufacture is 2 micrometers or less, The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 10 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder Combination with less than 30%, The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 5 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder is combination with less than 50%. The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 5 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder also in this has a more preferred combination with less than 50%. It is because there is less amount of the expensive silicon powder used, so a cost fall can be aimed at.

[0028]And when the mean volume diameter of the amorphous silica particles to manufacture is not less than 2 micrometers, The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 10 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder Not less than 30% combination with 70% or less, The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 5 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder is not less than 50% combination with 80% or less. The weight ratio to the weight by which the mean volume diameter of silica powder set 5 micrometers, and the silica powder and silicon powder of silica powder also in this has more preferred not less than 50% combination with 80% or less. It is because there is less amount of the expensive silicon powder used, so a cost fall can be aimed at like the reason of point **.

[0029]In addition, the combination with the weight ratio to the weight which set the particle diameter of desirable silica powder, and the silica powder and silicon powder of silica powder, It is 1/2 of the mean volume diameter of the amorphous silica particles which the balancer product particle diameter of silica powder manufactures, and the weight ratio to the weight which set the silica powder and silicon powder of silica powder is a combination which is a value which the silica and silica powder which are generated at the below-mentioned combustion heating process do not evaporate. When silica evaporates, the particle diameter of the amorphous silica particles formed is not concerned with the particle diameter of the silica powder of a raw material, but turns into almost same particle diameter. As for this, the particle diameter of the amorphous silica particles to manufacture becomes controllable.

[0030]It is necessary to supply oxygen of sufficient quantity to oxidize silicon powder in a reaction chamber. Otherwise, it is because the silicon which does not oxidize remains. Although methods of supplying oxygen in a reaction chamber include the method of supplying oxygen to the direct reaction interior of a room independently, the method which carrier gas is made to mix, and the aforementioned method of both using law together, the method which carrier gas is made to mix is simple, and preferred.

[0031]Carrier gas is gas used in order to make silicon powder and silica powder mobilize and to supply in a reaction chamber. As mentioned above, as for carrier gas, it is preferred that oxygen of the quantity which can oxidize all the silicon powder supplied as a raw material at least as a whole is contained.

[0032]And in addition to oxygen, if it is a reactant low gas to silicon powder and silica powder, it can mix to carrier gas and can also use for carrier gas. For example, it is possible to mix nitrogen etc. to carrier gas. Therefore, carrier gas can also be used only with oxygen gas, and can add oxygen as it is or further, and can also use cheap gas, such as air.

[0033]Although it is necessity to mobilize the mixture of the silicon powder, the silica powder or silicon powder, and silica powder which are supplied, respectively, and to supply only the quantity which can be supplied in a reaction chamber at worst, the quantity of the whole carrier gas, While becoming that the heat

which silicon powder burns that the quantity which supplies carrier gas too much is extensive, and is generated is intercepted, and silica powder is hard to be supplied, since combustion of silicon powder is not maintainable in a reaction chamber, it is necessary to make it a moderate quantity.

[0034]In a reaction chamber, by a certain ignition source, a combustion heating process makes silicon powder light, burns silicon powder, and with the heat to generate. The silica and silica powder which are generated by combustion of silicon powder are heated, and they are melting thru/or a process made to evaporate about the silica and silica powder to generate.

[0035]Especially if an ignition source is a means by which silicon powder can be lit, will not limit it, but as what can be used for a combustion heating process as an ignition source, For example, what is depended on what is depended on discharge, the thing which forms the chemicals flame which used LPG etc. in a reaction chamber, plasma discharge, and an arc is mentioned.

[0036]As for the wall in the reaction chamber which advances a combustion heating process, it is preferred to keep an impurity from mixing in the amorphous silica particles coated and manufactured by the substance which does not have influence in the amorphous silica particles formed even if it contacts silica, and other melting thru/or evaporation silica, or a substance [inertness / others].

[0037]A cooling process is a process which cools melting thru/or the evaporated silica and in which amorphous silica particles are made to form. A cooling process can also be performed in the same reaction chamber as a combustion heating process. when [which separates from the place which made silicon light] it is alike, and it follows, heat is emitted to the circumference, it is cooled and it is fusing, cooling solidification of melting thru/or the evaporated silica is carried out, and when having evaporated, it is cooled — it is alike, it takes, and condenses and solidifies.

[0038]Therefore, when silica is fusing, the particle diameter of the amorphous silica particles formed becomes larger than the silica powder of a raw material in many cases. And when silica evaporates, the particle diameter of the amorphous silica particles formed as mentioned above since silica has evaporated once is not concerned with the particle diameter of the silica powder of a raw material, but serves as an almost fixed size.

[0039]After the amorphous silica particles formed in this way perform a classification etc. by a sizer etc. if needed, they are caught by the collector etc.

[0040]

[Example]<Manufacturing method of amorphous silica particles> The manufacturing installation concerning the manufacturing method of this invention is shown in drawing 1. This manufacturing installation mainly comprises the reaction vessel 10 which has the ejection passage 11a on the reaction chamber surrounded with the heat-resistant brick 10a in the wall, and a side attachment wall, and the burner 9 which forms the flame 8 in the upper wall of the reaction vessel 10.

[0041]The powder feeder 1 which supplies silicon powder and silica thing powder, and the lead pipe 4 in which the LPG feed pipe 5 which supplies LPG the oxygen supplying tube 40 and for pilot flames was allocated are connected with the burner 9.

[0042]The powder capturing device 11 is formed in the ejection passage 11a, and exhaust gas is inhaled by the powder capturing device 11 by Blois 12.

[0043]The reaction apparatus constituted as mentioned above performed the following reactions, and the oxide was obtained.

[0044]The valve 50 of the oxygen supplying tube 40 and the LPG feed pipe 5 was opened first, and it was deoxidized by lighting the burner 9 and fully drying the inside of the reaction vessel 10. It supplied in the reaction chamber at the rate of flow of flow ³ of 8 m /, and time of carrier gas, and LPG0.4m³ / time.

Subsequently, from the powder feeder 1, silicon powder and silica powder were supplied and were burned. It mixed with the mixture ratio of each particle diameter and each crystalline silica powder of Examples 1 and 2 shown in the powder feeder 1 below, and silicon powder, and the mixture was put into the powder feeder.

[0045]The combustion gas which operates Blois 12 and contains silica powder was attracted, and silica powder was caught by the catching wearing 11.

[0046]When particle size distribution is large in the above-mentioned manufacturing installation, As shown in drawing 2, consider it as the capturing device of 2 stage structures, and the thing of small particle diameter which formed the filter which catches only the oxide more than desired particle diameter in the 1st step, and passed is caught in the 2nd step, The amorphous silica particles to which the diameter of a grain which is conveyed with the hopper which provided separately the amorphous silica particles of large particle diameter or small particle diameter caught in the 1st step or the 2nd step if needed, and is re-supplied into a reaction vessel was equal were obtained.

[0047]Therefore, the amorphous silica particles to which particle diameter was continuously equal can be obtained, without changing an increasing man hour and a device. Since the manufacturing installation shown in drawing 2 serves as a gestalt which reuses the amorphous silica particles of small particle diameter, when the amorphous silica particles of large particle diameter need to be reused, it needs to form the pipe which

• conveys amorphous silica particles to a powder feeder in front of the 1st step of filter.

[0048](The particle diameter and the mixture ratio of silicon powder and silica powder)

(Example 1) Silicon powder with a volume mean diameter of 20 micrometers and crystalline silica with a volume mean diameter of 5 micrometers were mixed, respectively so that crystalline silica might be 5, 10, 30, and 40 or 50 % of the weight to the entire volume which set silicon powder and crystalline silica powder.

[0049](Example 2) Silicon with a volume mean diameter of 20 micrometers and crystalline silica with a volume mean diameter of 10 micrometers were mixed, respectively so that crystalline silica might be 5, 10, and 30 or 40 % of the weight to the entire volume which set silicon powder and crystalline silica powder.

[0050](Result)

When the quantity which mixes example 1 crystallinity silica was 40 or less % of the weight, the particle size distribution of the generated amorphous silica particles was set to about 0.1–2 micrometers, and the volume mean diameter was set to about 1 micrometer. When the quantity which mixes crystalline silica was 50 % of the weight, the volume mean diameter of the generated amorphous silica particles was about 8 micrometers. And the sphericity (in this specification, the ratio of the amorphous silica particles by an electron microscope in every direction is called sphericity.) of each generated amorphous silica particle was a value of 0.98–1.02.

[0051]When the quantity which mixes example 2 crystallinity silica was 10 or less % of the weight of the whole, the particle size distribution of the generated amorphous silica particles was set to about 0.1–2 micrometers, and the volume mean diameter was set to about 1 micrometer. When the quantity which mixes crystalline silica was 30 or 40 % of the weight, the particle size distribution of the generated amorphous silica particles was set to about 10–20 micrometers, and the volume mean diameter was 12 micrometers. And the sphericity of each generated amorphous silica particle was a value of 0.98–1.02.

[0052]

[Effect of the Invention]That is, it has the effect that the manufacturing method of amorphous silica particles with a manufacturing cost low [this invention] and high sphericity can be provided.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-106521

(P2001-106521A)

(43) 公開日 平成13年4月17日 (2001.4.17)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 1 B 33/18		C 0 1 B 33/18	Z 4 G 0 1 4
C 0 3 B 20/00		C 0 3 B 20/00	D 4 G 0 7 2

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願平11-286808	(71) 出願人	000003207 トヨタ自動車株式会社 愛知県豊田市トヨタ町1番地
(22) 出願日	平成11年10月7日 (1999.10.7)	(71) 出願人	592218964 株式会社アドマテックス 東京都新宿区西新宿1丁目22番2号
		(72) 発明者	酒井 武信 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
		(74) 代理人	100081776 弁理士 大川 宏

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 非晶質シリカ微粒子の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 製造コストが低く、真球度の高い非晶質シリカ微粒子の製造方法を提供すること。

【解決手段】 本発明の非晶質シリカ微粒子の製造方法は、シリコン粉末とシリカ粉末とをキャリアガスとともに反応室内に供給する原料供給工程と、供給された前記シリコン粉末を前記反応室内で燃焼させて熱を発生して、生成するシリカおよび前記シリカ粉末を加熱して溶解乃至気化させる燃焼加熱工程と、前記溶解乃至気化させたシリカを冷却し非晶質シリカ微粒子を形成する冷却工程とからなることを特徴とする。つまり、シリカは、溶融させることによってその表面張力により真球となり、そのまま冷却されることによって真球度の高い非晶質シリカ微粒子となる。そして、シリカは、一度、気化させることによって、冷却・凝集される際に真球度の高い非晶質シリカ微粒子となる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シリコン粉末とシリカ粉末とをキャリアガスとともに反応室内に供給する原料供給工程と、供給された前記シリコン粉末を前記反応室内で燃焼させて熱を発生して、生成するシリカおよび前記シリカ粉末を加熱して溶解乃至気化させる燃焼加熱工程と、前記溶解乃至気化させたシリカを冷却し非晶質シリカ微粒子を形成する冷却工程とからなることを特徴とする非晶質シリカ微粒子の製造方法。

【請求項 2】 前記シリカ粉末は、該シリカ粉末の該シリカ粉末と前記シリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径とが、形成された前記非晶質シリカ微粒子の平均体積径が $20\mu\text{m}$ 以下となる値の組み合わせである請求項 1 に記載の非晶質シリカ微粒子の製造方法。

【請求項 3】 前記シリカ粉末は、該シリカ粉末の該シリカ粉末と前記シリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径とが、前記燃焼加熱工程において、前記生成するシリカおよび該シリカ粉末が気化する値の組み合わせである請求項 1 に記載のシリカ微粒子製造方法。

【請求項 4】 前記シリカ粉末は、該シリカ粉末の該シリカ粉末と前記シリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径が、形成された前記非晶質シリカ微粒子の平均体積径が $2\mu\text{m}$ 以下となる値の組み合わせである請求項 3 に記載の非晶質シリカ微粒子の製造方法。

【請求項 5】 前記シリカ粉末の平均体積径は、 $10\mu\text{m}$ 以下であって、かつ該シリカ粉末は、該シリカ粉末と前記シリコン粉末とを合わせた重量に対して $50\text{重量}\%$ 未満である請求項 4 に記載のシリカ微粒子の製造方法。

【請求項 6】 前記シリカ粉末は、平均体積径が製造する非晶質シリカ微粒子の平均体積径の $\frac{2}{3}$ であって、かつ該シリカ粉末の該シリカ粉末と前記シリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が、前記燃焼加熱工程において、前記生成するシリカおよび該シリカ粉末が気化しない値である請求項 2 に記載のシリカ微粒子製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、真球度の高い非晶質シリカ微粒子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、一般的な金属酸化物超微粒子の製造方法として、特公平 1-55201 号公報に、酸素を含む雰囲気内においてバーナにより化学炎を形成し、この化学炎の中に目的の金属酸化物を構成する金属粉末を粉塵雲を形成しうる量投入して燃焼させて、粒子径が $5\sim 100\text{nm}$ 程度である金属酸化物超微粒子を合成する製造方法の開示がある。

【0003】 また、特許第 2600181 号公報に、金属酸化物を構成する金属粉末と、その金属酸化物粉末とをキャリアガスとともに反応容器内に供給した後に金属粉末を燃焼させて、その原料の金属酸化物粉末を核として金属酸化物粉末を粒成長させて合成する金属酸化物の製造方法が開示されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 上記特公平 1-55201 号公報に記載された製造方法では、原料の金属シリコンが高価なので、コスト面で実施が困難であって、製造される非晶質シリカ微粒子の粒子径も広範囲にコントロールできなかった。

【0005】 そして、特許第 2600181 号公報には、具体的にアルミナ粒子の製造方法が記載されるのみであり、記載された製造方法では、原料のアルミナ粉末より大粒子径のアルミナ粉末を得ることはできるが、原料より粒子径の小さいアルミナ粉末の製造については記載がなかった。そして、製造されたアルミナの真球度については、著しく高いものではなかった。したがって、本公報に記載された製造方法では、性質に特徴を有する非晶質シリカ微粒子が製造できることは明らかではなかった。

【0006】 真球度の高い非晶質シリカ微粒子は、半導体のパッケージを覆う封止剤の充填剤としての用途等のような種々の有用な用途がある。その場合に非晶質シリカ微粒子は、真球度が高いことが好ましい性質である。真球度の高い非晶質シリカ微粒子を容易に製造する方法は従来には存在しなかった。また、非晶質シリカ微粒子は、用途により種々の粒子径のものが要求され、簡便な製造方法で種々の粒子径のものが得られることが望ましい。

【0007】 すなわち、本発明では、製造コストが低く、真球度の高い非晶質シリカ微粒子の製造方法を提供することを解決すべき課題とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決する目的で本発明者らは、鋭意研究を行った結果、以下の非晶質シリカ微粒子の製造方法を発明した。

【0009】 すなわち、本発明の非晶質シリカ微粒子の製造方法は、シリコン粉末とシリカ粉末とをキャリアガスとともに反応室内に供給する原料供給工程と、供給された前記シリコン粉末を前記反応室内で燃焼させて熱を発生して、生成するシリカおよび前記シリカ粉末を加熱して溶解乃至気化させる燃焼加熱工程と、前記溶解乃至気化させたシリカを冷却し非晶質シリカ微粒子を形成する冷却工程とからなることを特徴とする。

【0010】 つまり、シリカを加熱溶解させることによってその表面張力により真球となって、そのまま冷却されることによって真球度の高い非晶質シリカ微粒子が形成される。そして、シリカは、一度、気化させることに

よって、冷却・凝集される際に真球度の高い非晶質シリカ微粒子となる。

【0011】また、シリカを熔融乃至気化させるために原料の金属シリコンが酸化される際に発生する熱を用いるのでシリカを長時間加熱することができ、製造される非晶質シリカ微粒子の粒子径を大きくすることも可能である。そして、シリコンの量を調整することによって発熱量を増大させてシリカを気化し、微粒子とすることもできる。

【0012】したがって、最初に投入するシリカの粒子径、シリコンとシリカとの比をコントロールすることによって、最終的に製造される非晶質シリカ微粒子の粒子径を変化させることができる。

【0013】したがって、本発明の非晶質シリカ微粒子の製造方法によれば、高価なシリコンを不必要に大量使用することなく、必要な粒子径分布を有し真球度の高い非晶質シリカ微粒子を製造することができる。

【0014】

【発明の実施の形態】以下に本発明の非晶質シリカ微粒子の製造方法の実施形態について、詳細に説明する。なお、本発明は、以下に示される実施形態によって限定されるものではない。

【0015】本実施形態の非晶質シリカ微粒子の製造方法は、原料供給工程と、燃焼加熱工程と、冷却工程とを有する。

【0016】本実施形態の非晶質シリカ微粒子の製造方法は、たとえば、原料供給部と反応室と非晶質シリカ微粒子捕集部とを有する製造装置を用いて行われる。原料供給部は原料を貯蔵し、原料を反応室内に供給する手段であり、反応室は内部で原料を燃焼させる手段であって、非晶質シリカ微粒子捕集部は製造した非晶質シリカ微粒子を捕集する手段である。

【0017】原料供給工程は、シリコン粉末とシリカ粉末とをキャリアガスとともに反応室内に供給する工程である。

【0018】シリコン粉末とシリカ粉末とはあらかじめ混合しておいて同一の場所に貯蔵しても良いし、別々に貯蔵して反応室に供給される前もしくは供給された後に混合されるものであっても良い。同一の場所に貯蔵する場合は、キャリアガスは一種類でよいが、別々に貯蔵される場合は、2種類のキャリアガスを用いるものであってもよい。

【0019】シリコン粉末は、製造される非晶質シリカ微粒子に求められる純度に応じた純度のシリコン粉末を用いる。具体的には、非晶質シリカ微粒子に必要な純度に応じて、シリコン元素および酸素元素以外の元素の許含量が規定される。高純度の非晶質シリカ微粒子を製造する場合には、必要な純度を確保できるようにシリコン粉末の純度を規定する。

【0020】そして、シリコン粉末の粒子径は、特に限

定するものではないがシリカ粒子と混合しやすい程度の粒子径であることが好ましい。また、燃焼しやすくする目的で粒子径はある程度細かい方がよい。ただし、あまりに粒子径を小さくすると流動性が悪くなり、反応室内に供給し難くなるという不都合がある。具体的には、5～30 μm 程度であることがより好ましい。シリコン粉末の粒子の形は、特に球状である必要はなく限定するものではない。

【0021】シリカ粉末は、結晶質、非晶質等の結晶形態は問わない。また、本発明の非晶質シリカ微粒子の製造方法により製造した非晶質シリカ微粒子を再び原料として用いることも可能である。そして、シリカ粉末についても、製造される非晶質シリカ微粒子に求められる純度に応じた純度のシリカ粉末を用いる。具体的には、シリコン粉末と同様に、製造される非晶質シリカ微粒子に求められる純度に応じて、シリカ粉末に含有するシリコン元素および酸素元素以外の元素の許含量を決定する。

【0022】シリカ粉末の粒子の形は、シリコン粉末と同じく特に球状である必要はなく、限定されるものではない。そして、シリカ粉末の粒子径は、シリカ粉末の粒子径のみで単独に決定されるものではなく、混合されるシリコン粉末とシリカ粉末との混合比にも影響される。

【0023】すなわち、シリカ粉末の粒子径は、そのシリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比に応じて、後述の燃焼加熱工程でシリカ粉末と生成するシリカとが、熔融乃至気化する粒子径であることが必要である。また逆にシリカ粉末の粒子径が決定されると、そのシリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比は、後述の燃焼加熱工程でシリカ粉末と生成するシリカとが、熔融乃至気化する重量比であることが必要である。シリカが熔融乃至気化しないと最終的に真球度の高い非晶質シリカ微粒子を製造できないからである。

【0024】そして、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径との値の組み合わせが、最終的に形成される非晶質シリカ微粒子の平均体積径が20 μm 以下となるように、値の組み合わせを決定することが好ましい。平均体積径が20 μm 以下の非晶質シリカ微粒子は、より有用性が高いからである。

【0025】また、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径とが、後述の燃焼加熱工程で生成するシリカおよびシリカ粉末が気化する値の組み合わせであることが好ましい。高価なシリコンを大量に使用しなくてもシリカを気化させることによって供給するシリカ粉末と比較して粒子径の小さい非晶質シリカ微粒子を製造できるからである。さらには、同じ理由により、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比と、平均体積径とが、最終的に形成された非晶質シリカ微粒子の

10

20

30

40

50

平均体積径が $2\mu\text{m}$ 以下となる値の組み合わせであることがより好ましい。

【0026】そして、シリカ粉末の平均体積径は、 $20\mu\text{m}$ 以下が好ましく、さらには $10\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。この場合に、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比は、50%未満が好ましく、さらには30%未満がより好ましい。

【0027】そしてさらに好ましいシリカ粉末の粒子径と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比との組み合わせは、製造する非晶質シリカ微粒子の平均体積径が $2\mu\text{m}$ 以下である場合は、シリカ粉末の平均体積径が $10\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が30%未満との組み合わせと、シリカ粉末の平均体積径が $5\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が50%未満との組み合わせである。このなかでもシリカ粉末の平均体積径が $5\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が50%未満との組み合わせがより好ましい。高価なシリコン粉末の使用量がより少ないのでコスト低下を図ることができるからである。

【0028】そして、製造する非晶質シリカ微粒子の平均体積径が $2\mu\text{m}$ 以上である場合は、シリカ粉末の平均体積径が $10\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が30%以上70%以下との組み合わせと、シリカ粉末の平均体積径が $5\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が50%以上80%以下との組み合わせである。このなかでもシリカ粉末の平均体積径が $5\mu\text{m}$ と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比が50%以上80%以下との組み合わせがより好ましい。先述の理由と同様に、高価なシリコン粉末の使用量がより少ないのでコスト低下を図ることができるからである。

【0029】また、その他に好ましいシリカ粉末の粒子径と、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比との組み合わせは、シリカ粉末の平均体積径が製造する非晶質シリカ微粒子の平均体積径の2分の1であって、シリカ粉末のシリカ粉末とシリコン粉末とを合わせた重量に対する重量比は、後述の燃焼加熱工程で生成するシリカおよびシリカ粉末が気化しない値である組み合わせである。なお、シリカが気化する場合には、形成される非晶質シリカ微粒子の粒子径は、原料のシリカ粉末の粒子径に関わらず、ほぼ同じような粒子径となる。これにより、製造する非晶質シリカ微粒子の粒子径が制御可能となる。

【0030】シリコン粉末を酸化させるのに充分な量の酸素を反応室内に供給する必要がある。そうでないと酸

化されないシリコンが残留するからである。反応室内に酸素を供給する方法としては、独立して直接反応室内に酸素を供給する方法とキャリアガスに混合させる方法と前記の両方法を併用する方法があるが、キャリアガスに混合させる方法が簡便であり好ましい。

【0031】キャリアガスは、シリコン粉末およびシリカ粉末を流動化させて反応室内に供給する目的で使用するガスである。前述のように、キャリアガスは、全体として少なくとも原料として供給するシリコン粉末をすべて酸化できる量の酸素が含まれていることが好ましい。

【0032】そして、キャリアガスには、酸素に加えてシリコン粉末とシリカ粉末とに対する反応性の低い気体であればキャリアガスに混合して用いることもできる。たとえば、キャリアガスに窒素等を混合することが可能である。したがって、キャリアガスは、酸素ガスのみで使用することもでき、また、空気等の安価なガスをそのまま、もしくは、さらに酸素を加えて用いることも可能である。

【0033】キャリアガス全体の量は、供給されるシリコン粉末、シリカ粉末もしくはシリコン粉末とシリカ粉末との混合物をそれぞれ流動化して反応室内に供給できるだけの量を供給することが最低限必要であるが、あまりにキャリアガスを供給する量が大量であると、シリコン粉末が燃焼して発生する熱が遮断されてシリカ粉末に供給され難くなると同時に、反応室内でシリコン粉末の燃焼が持続できないので適度な量にする必要がある。

【0034】燃焼加熱工程は、反応室内において、何らかの着火源によってシリコン粉末に着火させて、シリコン粉末を燃焼して、その発生する熱によって、シリコン粉末の燃焼により生成するシリカとシリカ粉末とを加熱して、生成するシリカとシリカ粉末とを溶融乃至気化させる工程である。

【0035】着火源は、シリコン粉末に着火することができるとすれば特に限定しないが、着火源として燃焼加熱工程に用いることができるものとしては、たとえば、放電によるもの、反応室内にLPG等を用いた化学炎を形成するもの、プラズマ放電、アークによるもの等が挙げられる。

【0036】燃焼加熱工程を進行させる反応室内の内壁は、シリカやその他の溶融乃至気化シリカと接触しても形成される非晶質シリカ微粒子に影響のない物質やその他の不活性な物質でコーティング等して製造される非晶質シリカ微粒子に不純物が混入しないようにすることが好ましい。

【0037】冷却工程は、溶融乃至気化したシリカを冷却して非晶質シリカ微粒子を形成させる工程である。冷却工程も燃焼加熱工程と同じ反応室内で行うことができる。溶融乃至気化したシリカは、シリコンに着火させた場所から離れるにしたがって周囲に熱を放出して冷却され溶融している場合には冷却固化し、気化している場合

10

20

30

40

50

には冷却するにつれて凝集して固化する。

【0038】したがって、シリカが溶融している場合には、形成される非晶質シリカ微粒子の粒子径は、原料のシリカ粉末より大きくなることが多い。そして、シリカが気化する場合には、前述のように、一度、シリカが気化しているので形成される非晶質シリカ微粒子の粒子径は原料のシリカ粉末の粒子径に関わらず、ほぼ一定の大きさとなる。

【0039】このように形成された非晶質シリカ微粒子は、必要に応じて分級器等で分級等を行った後に、捕集器等によって捕集される。

【0040】

【実施例】〈非晶質シリカ微粒子の製造方法〉図1に本発明の製造方法に係る製造装置を示す。この製造装置は、内壁を耐熱レンガ10aで囲まれた反応室を、そして、側壁に排出通路11aを有する反応容器10と、反応容器10の上壁には、火炎8を形成するバーナ9とから主として構成されている。

【0041】バーナ9には、シリコン粉末およびシリカ物粉末とを供給する粉末供給装置1と、酸素供給管40および種火用のLPGを供給するLPG供給管5が配設された導管4が接続している。

【0042】排出通路11aには、粉末捕集装置11が設けられ、粉末捕集装置11にはプロア12により排気ガスが吸入される。

【0043】上記のように構成された反応装置により以下のような反応を行ない酸化物を得た。

【0044】まず酸素供給管40およびLPG供給管5のバルブ50を開き、バーナ9に着火して反応容器10内を十分に乾燥させ、脱酸素を行なった。キャリアガスの流量 $8\text{ m}^3/\text{時間}$ 、LPG $0.4\text{ m}^3/\text{時間}$ の流速で反応室内に供給した。ついで粉末供給装置1よりシリコン粉末とシリカ粉末とを供給して燃焼させた。粉末供給装置1には、以下に示す実施例1及び2のそれぞれの粒子径とそれぞれの結晶性シリカ粉末およびシリコン粉末の混合比とで混合し、その混合物を粉末供給装置に入れた。

【0045】プロア12を作動させてシリカ粉末を含む燃焼排ガスを吸引し、捕集装置11によりシリカ粉末を捕集した。

【0046】また上記の製造装置では粒子径分布が広い場合には、図2に示すように2段階の捕集装置とし、1段階目で所望の粒子径以上の酸化物のみを捕集するフィルタを設け通過した小粒子径のものは2段階目で捕集し、必要に応じて1段階または2段階目で捕集した大粒子径もしくは小粒子径の非晶質シリカ微粒子を別途設けたホッパーにて搬送し反応容器内へ再供給すると粒径の揃った非晶質シリカ微粒子が得られた。

【0047】したがって工数増加や装置を変更することなく連続して粒子径のそろった非晶質シリカ微粒子を得

ることができる。なお、図2に示した製造装置は、小粒子径の非晶質シリカ微粒子を再利用する形態となっているので、大粒子径の非晶質シリカ微粒子を再利用する必要がある場合は、非晶質シリカ微粒子を粉末供給装置に輸送する管を1段階目のフィルタの前に設ける必要がある。

【0048】(シリコン粉末およびシリカ粉末の粒子径と混合比)

【実施例1】体積平均径 $20\text{ }\mu\text{m}$ のシリコン粉末と体積平均径 $5\text{ }\mu\text{m}$ の結晶性シリカとを結晶性シリカがシリコン粉末と結晶性シリカ粉末とを合わせた全体量に対して5、10、30、40、50重量%となるようにそれぞれ混合した。

【0049】(実施例2)体積平均径 $20\text{ }\mu\text{m}$ のシリコンと体積平均径 $10\text{ }\mu\text{m}$ の結晶性シリカとを結晶性シリカがシリコン粉末と結晶性シリカ粉末とを合わせた全体量に対して5、10、30、40重量%となるようにそれぞれ混合した。

【0050】(結果)

実施例1

結晶性シリカを混合する量が40重量%以下である場合には、生成した非晶質シリカ微粒子の粒子径分布は、 $0.1\sim 2\text{ }\mu\text{m}$ 程度、体積平均径は $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度となった。結晶性シリカを混合する量が50重量%である場合には、生成した非晶質シリカ微粒子の体積平均径は、 $8\text{ }\mu\text{m}$ 程度であった。そして、生成した非晶質シリカ微粒子は、いずれも真球度(本明細書では、電子顕微鏡による非晶質シリカ微粒子の縦横の比を真球度という。)が $0.98\sim 1.02$ の値であった。

【0051】実施例2

結晶性シリカを混合する量が全体の10重量%以下である場合には、生成した非晶質シリカ微粒子の粒子径分布は、 $0.1\sim 2\text{ }\mu\text{m}$ 程度となり、体積平均径は $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度となった。結晶性シリカを混合する量が30、40重量%である場合には、生成した非晶質シリカ微粒子の粒子径分布は、 $10\sim 20\text{ }\mu\text{m}$ 程度となり、体積平均径は、 $12\text{ }\mu\text{m}$ であった。そして、生成した非晶質シリカ微粒子は、いずれも真球度が $0.98\sim 1.02$ の値であった。

【0052】

【発明の効果】すなわち、本発明は、製造コストが低く、真球度の高い非晶質シリカ微粒子の製造方法を提供できるという効果を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例に係る製造装置の模式断面図である。

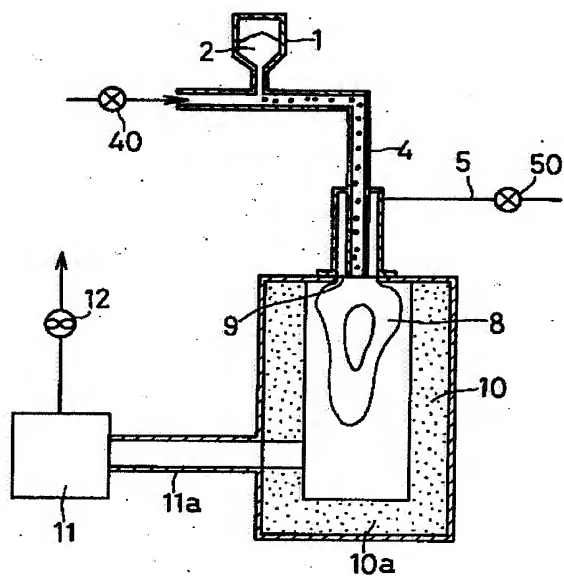
【図2】実施例の変形例であり小(大)粒子径の非晶質シリカ微粒子を再利用する製造装置の模式断面図である。

【符号の説明】

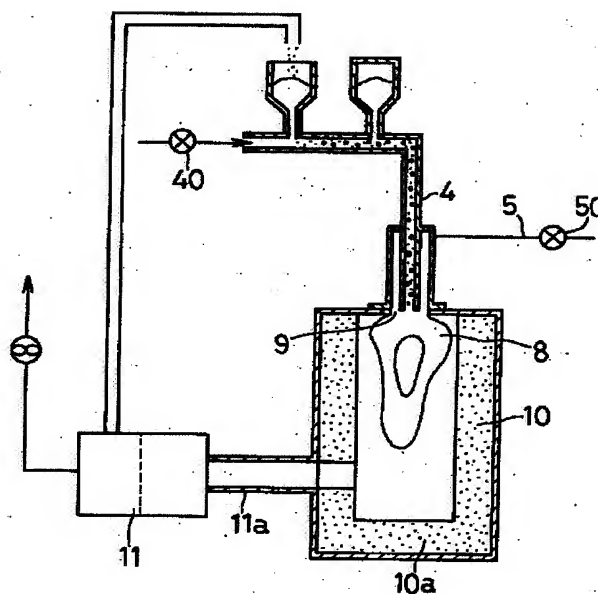
1、1' …粉末供給装置 4…導管 5…LPG供

給管 40…酸素供給管 8…火炎 9…バーナ * 12…ブロー
10…反応容器 11、11'…粉末捕集容器 *

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 安部 賛
愛知県西加茂郡三好町大字明知字西山1
株式会社アドマテックス内
(72)発明者 加藤 幸宏
愛知県西加茂郡三好町大字明知字西山1
株式会社アドマテックス内

Fターム(参考) 4G014 AH15
4G072 AA28 BB05 BB07 CC16 GG03
HH01 HH15 JJ03 MM01 MM02
PP17 RR03 RR11 TT01 UU09
UU30